

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

10. 3. 2004

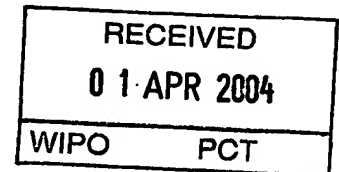
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 2 月 1 0 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 0 3 1 9 2 7
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 3 - 0 3 1 9 2 7]

出 願 人 日 本 電 気 株 式 有 限 公 司
Applicant(s):

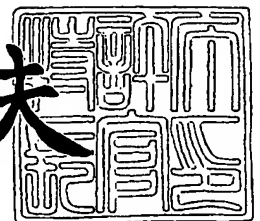


**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 2 月 5 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 34103729

【提出日】 平成15年 2月10日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C01B 31/00

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 蒔 丈史

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 眞子 隆志

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 吉武 務

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 久保 佳実

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 飯島 澄男

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 湯田坂 雅子

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

 【氏名】 糟屋 大介

【特許出願人】

 【識別番号】 000004237

 【氏名又は名称】 日本電気株式会社

【代理人】

【識別番号】 100110928

【弁理士】

【氏名又は名称】 速水 進治

【電話番号】 03-3461-3687

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 138392

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0110433

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ナノカーボンの製造方法および製造装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 グラファイトターゲットの表面に光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するとともに、光が照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化する工程と、

平滑化された前記表面に、再度、光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収する工程と、

を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 2】 円筒形のグラファイトターゲットを中心軸周りに回転させながら、前記グラファイトターゲットの表面に光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するとともに、光が照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化する工程と、

前記グラファイトターゲットを中心軸周りに回転させながら、平滑化された前記表面に、再度、光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収する工程と、

を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 3】 請求項 1 または 2 に記載のナノカーボンの製造方法において、グラファイトターゲットの表面に光照射する前記工程およびグラファイトターゲット表面に再度光照射する前記工程で、光の照射位置を移動させながら光照射することを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 4】 請求項 1 乃至 3 いずれかに記載のナノカーボンの製造方法において、光を照射された表面を平滑化する前記工程は、前記グラファイトターゲットの表面の一部を除去する工程を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 5】 請求項 1 乃至 4 いずれかに記載のナノカーボンの製造方法において、前記グラファイトターゲットの表面に光照射する前記工程は、レーザー光を照射する工程を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 6】 請求項 1 乃至 5 いずれかに記載のナノカーボンの製造方法に

において、ナノカーボン回収する前記工程は、カーボンナノホーン集合体を回収する工程を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法。

【請求項 7】 グラファイトターゲットの表面に光を照射するための光源と

、
光を照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化するための表面処理手段と、

光の照射によりグラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するための回収手段と、

を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置。

【請求項 8】 円筒状のグラファイトターゲットを保持するとともに該グラファイトターゲットを中心軸周りに回転させるターゲット保持手段と、

前記グラファイトターゲットの表面に光を照射するための光源と、

光を照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化するための表面処理手段と、

光の照射により前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するための回収手段と、

を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置。

【請求項 9】 請求項 7 または 8 に記載のナノカーボンの製造装置において、前記光源に対する前記グラファイトターゲットの相対的位置を移動させる移動手段をさらに備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置。

【請求項 10】 請求項 7 乃至 9 いずれかに記載のナノカーボンの製造装置において、前記表面処理手段は、前記光の照射位置と異なる箇所において前記グラファイトターゲットの表面の一部を除去することを特徴とするナノカーボンの製造装置。

【請求項 11】 請求項 10 に記載のナノカーボンの製造装置において、前記表面処理手段にて発生する前記グラファイトターゲットの屑を回収するための屑回収手段をさらに備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置。

【請求項 12】 請求項 7 乃至 11 いずれかに記載のナノカーボンの製造装置において、前記ナノカーボンがカーボンナノホーン集合体であることを特徴と

するナノカーボンの製造装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ナノカーボンの製造方法および製造装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、ナノカーボンの工学的応用が盛んに検討されている。ナノカーボンとは、カーボンナノチューブやカーボンナノホーン等に代表される、ナノスケールの微細構造を有する炭素物質のことをいう。このうち、カーボンナノホーンは、グラファイトのシートが円筒状に丸まったカーボンナノチューブの一端が円錐形状となった管状体の構造を有しており、その特異な性質から、様々な技術分野への応用が期待されている。カーボンナノホーンは、通常、各々の円錐部間に働くファンデルワールス力によって、チューブを中心に円錐部が角（ホーン）のように表面に突き出る形態で集合している。

【0003】

カーボンナノホーン集合体は、不活性ガス雰囲気中で原料の炭素物質（以下適宜グラファイトターゲットと呼ぶ）に対してレーザー光を照射するレーザー蒸発法によって製造されることが報告されている（特許文献1）。

【0004】

この方法では、一度レーザー光を照射されたグラファイトターゲットの表面は粗面化される。図3は円筒形のグラファイトターゲットを用いた場合について、この様子を例示する図である。図3（c）は1回目にレーザー光103が照射される際のグラファイトロッド101の長さ方向に垂直な断面図であり、図3（a）はレーザー光103照射部の拡大図である。図3（a）、（c）に示すように、1回目にレーザー光103がされる側面は平滑面であるため、プルーム109が一定方向に生じる。一方、図3（d）は図3（c）において1回以上レーザー光103が照射された後の側面に再度レーザー光103を照射する様子を示す図である。図3（b）はレーザー光103照射部の拡大図である。図3（b）、（

d) に示すように、一度レーザー光 103 が照射されるとグラファイトロッド 101 の側面は粗面化する。粗面化された部位に再度レーザー光 103 を照射すると、照射位置におけるパワー密度にばらつきが生じ、プルーム 109 の発生方向にも乱れが生じる。

【0005】

このように、一度レーザー光 103 が照射された面は粗面化されているため、再度レーザー光 103 を照射すると、レーザー光 103 の照射角やグラファイトロッド 101 側面での光照射面積が変化し、グラファイトロッド 101 側面におけるレーザー光 103 のパワー密度が変化してしまい、カーボンナノホーン集合体を安定的に大量生産することが困難であった。

【0006】

【特許文献 1】

特開 2001-64004 号公報

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

このように、従来、カーボンナノホーン集合体を連続的、安定的に製造する方法が見出されておらず、カーボンナノホーン集合体を実用化する上では、大量生産技術の開発が重要な課題である。上記事情に鑑み、本発明の目的は、カーボンナノホーン集合体を安定的に大量生産するための製造方法および製造装置を提供することにある。また、本発明の別の目的は、ナノカーボンを安定的に大量生産するための製造方法および製造装置を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明によれば、グラファイトターゲットの表面に光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するとともに、光が照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化する工程と、平滑化された前記グラファイトターゲットの表面に、再度、光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収する工程と、を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法が提供される。

【0009】

また本発明によれば、グラファイトターゲットの表面に光を照射するための光源と、光を照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化するための表面処理手段と、光の照射によりグラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するための回収手段と、を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置が提供される。

【0010】

本発明において、「平滑化」とは、処理前に比べてグラファイトターゲットの表面の凹凸の程度を相対的に小さくする処理をいう。本発明に係るナノカーボンの製造方法によれば、光照射によりグラファイトターゲット表面は粗面化するが、これを平滑化し、再度平滑化された部位に光照射を行う。したがって、光が照射されるグラファイトターゲット表面は常に平滑な状態に維持される。したがって、グラファイトターゲット表面の照射部位におけるパワー密度が一定に保たれるため、ナノカーボンを安定的に大量合成することが可能となる。なお、本発明において、以下「パワー密度」とは、グラファイトターゲット表面に実際に照射される光のパワー密度、すなわちグラファイトターゲット表面の光照射部位におけるパワー密度を指すものとする。

【0011】

本発明によれば、円筒形のグラファイトターゲットを中心軸周りに回転させながら、前記グラファイトターゲットの表面に光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するとともに、光が照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化する工程と、前記グラファイトターゲットを中心軸周りに回転させながら、平滑化された前記表面に、再度、光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収する工程と、を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法が提供される。

【0012】

また本発明によれば、円筒状のグラファイトターゲットを保持するとともに該グラファイトターゲットを中心軸周りに回転させるターゲット保持手段と、前記

グラファイトターゲットの表面に光を照射するための光源と、光を照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化するための表面処理手段と、光の照射により前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するための回収手段と、を備えることを特徴とするナノカーボンの製造装置が提供される。

【0013】

本発明によれば、円筒形のグラファイトターゲットが中心軸周りに回転されるため、光照射により粗面化された側面が平滑化される。そして、平滑化された側面に再度光照射される。このように、円筒形のグラファイトターゲットを回転させながら光照射と平滑化の工程を行うことにより、ナノカーボンを連続的に効率よく大量生産することが可能となる。

【0014】

なお、本発明において、「中心軸」とは、円筒形のグラファイトターゲットの長さ方向に垂直な断面中心を通り、長さ方向に水平な軸のことをいう。また、円筒形のグラファイトターゲットとして、たとえばグラファイトロッドが利用可能である。ここで、「グラファイトロッド」とは、ロッド状に成形されたグラファイトターゲットのことをいう。ロッド状であれば、中空、中実の別は問わない。また、光が照射される円筒形のグラファイトターゲットの表面は、上述のように、円筒形のグラファイトターゲットの側面であることが好ましい。ここで、「円筒形のグラファイトターゲットの側面」とは、円筒の長さ方向に平行な曲面のことを指す。

【0015】

本発明のナノカーボンの製造方法において、前記グラファイトターゲットの表面に光照射する工程および該グラファイトターゲット表面に再度光照射する工程で、光の照射位置を移動させながら光照射することができる。

【0016】

また本発明のナノカーボンの製造装置において、前記光源に対する前記グラファイトターゲットの相対的位置を移動させる移動手段をさらに備えることができる。移動手段として、たとえば、円筒形のグラファイトターゲットを中心軸周り

に回転させながら光照射する場合、グラファイトターゲットの長さ方向の照射位置を移動させるようにグラファイトターゲットの位置を移動させる態様を採用することができる。

【0017】

こうすることにより、光照射、平滑化、再度の光照射の工程をより一層効率よく連続的に行うことができるため、ナノカーบอนを効率よく大量生産することができる。

【0018】

たとえば本発明によれば、グラファイトターゲットをチャンバー内に設置し、前記グラファイトターゲットの表面に対し、照射位置を移動させながら光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収するとともに光が照射された前記グラファイトターゲットの表面を平滑化する工程と、前記チャンバーから前記グラファイトターゲットを取り出すことなく、平滑化された前記グラファイトターゲットの表面に対し、照射位置を移動させながら再度、光照射し、前記グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収する工程と、を含むことを特徴とするナノカーボンの製造方法が提供される。

【0019】

本発明のナノカーボンの製造方法において、光を照射された表面を平滑化する前記工程は、前記グラファイトターゲットの表面の一部を除去する工程を含むことができる。

【0020】

また本発明のナノカーボンの製造装置において、前記表面処理手段は、前記光の照射位置と異なる箇所において前記グラファイトターゲットの表面の一部を除去することができる。

【0021】

こうすることにより、光照射により粗面化したグラファイトターゲット表面を、効率よく平滑化することができる。グラファイトターゲット表面を平滑化することができれば、その一部を除去する方法に特に制限はないが、たとえば、切削

、研削、研磨などが挙げられる。

【0022】

本発明のナノカーボンの製造装置において、前記表面処理手段にて発生する前記グラファイトターゲットの屑を回収するための屑回収手段をさらに備えることができる。こうすることにより、グラファイトターゲット表面の切削化により生じた切削屑を、生成したナノカーボンと効率よく分離し、回収することが可能となる。

【0023】

本発明のナノカーボンの製造方法において、光照射する前記工程は、レーザー光を照射する工程を含むことができる。こうすることにより、光の波長および方向を一定とすることができるため、グラファイトターゲット表面への光照射条件を、精度良く制御することができる。したがって、所望のナノカーボンを選択的に製造することが可能となる。

【0024】

本発明のナノカーボンの製造方法において、ナノカーボンを回収する前記工程は、カーボンナノホーン集合体を回収する工程を含むことができる。

【0025】

また、本発明のナノカーボンの製造装置において、前記ナノカーボンはカーボンナノホーン集合体とすることができる。

【0026】

こうすることにより、カーボンナノホーン集合体の大量合成を効率よく行うことができる。本発明において、カーボンナノホーン集合体を構成するカーボンナノホーンは、単層カーボンナノホーンとすることもできるし、多層カーボンナノホーンとすることもできる。

【0027】

また、ナノカーボンとしてカーボンナノチューブを回収することもできる。

【0028】

【発明の実施の形態】

以下、ナノカーボンがカーボンナノホーン集合体である場合を例に、本発明に

係るナノカーボンの製造装置および製造方法の好ましい実施の形態について説明する。

【0029】

図1は、ナノカーボンの製造装置の構成の一例を示す図である。図1の製造装置は、製造チャンバー107、ナノカーボン回収チャンバー119、および切削グラファイト回収チャンバー121の三つのチャンバー、および製造チャンバー107にレーザー光窓113を通じてレーザー光103を照射するためのレーザー光源111、レーザー光103の集光用のレンズ123を備える。

【0030】

レーザー光103照射のターゲットとなる固体炭素単体物質として、グラファイトロッド101を用いる。グラファイトロッド101は回転装置115に固定されており、中心軸周りに軸として回転可能である。またグラファイトロッド101は位置移動も可能である。グラファイトロッド101の側面にレーザー光源111からレーザー光103が照射され、その際のブルーム109の発生方向にナノカーボン回収チャンバー119が設けられているため、生成したカーボンナノホーン集合体117はナノカーボン回収チャンバー119に回収される。

【0031】

グラファイトロッド101は回転装置115により回転しているため、レーザー光103が照射された領域は、切削バイト105がグラファイトロッド101に当接する箇所に導かれ、この箇所で切削され側面が平滑化される。切削バイト105によるグラファイトロッド101の切削屑は、切削グラファイト回収チャンバー121に回収され、生成したカーボンナノホーン集合体117と分離される。

【0032】

図1の装置では、レーザー光源111および切削バイト105の位置は固定されている。グラファイトロッド101がその中心軸周りに回転するため、レーザー光103の照射位置が、速やかに切削バイト105に当接する位置へと移動し、切削バイト105によって平滑化される。このとき、グラファイトロッド101がその長軸方向に移動することにより、レーザー光103の照射位置が変化する。

る。切削バイト 105 による切削部位も、照射位置の変化に対応して変化する。

【0033】

この様子を図 2 に示す。図 2 は、図 1 のナノカーボンの製造装置におけるグラファイトロッド 101 とレーザー光 103、切削バイト 105 の位置関係を示す図である。図 2 に示すように、レーザー光 103 は、照射位置とグラファイトロッド 101 の長さ方向に垂直な断面中心とを結ぶ線分と、水平面とのなす角、すなわち本実施形態における照射角が一定となるように照射される。レーザー光 103 の照射角を一定に保ちながら、グラファイトロッド 101 をその長さ方向にスライドさせることにより、グラファイトロッド 101 の長さ方向にレーザー光 103 を一定のパワー密度で連続的に照射することができる。

【0034】

このときの照射角は 30° 以上 60° 以下とすることが好ましい。なお上述のように、本実施形態において照射角とは、図 2 および図 3 (c)、(d) に示すように、グラファイトロッド 101 の長さ方向に垂直な断面において、照射位置と円の中心とを結ぶ線分と、水平面とのなす角と定義する。この照射角を 30° 以下とすることにより、照射するレーザー光 103 の反射、すなわち戻り光の発生を防止することができる。また、発生するブルーム 109 がレーザー光窓 113 を通じてレンズ 123 へ直撃することが防止される。このため、レンズ 123 を保護し、またカーボンナノホーン集合体 117 のレーザー光窓 113 への付着防止に有効である。また、レーザー光 103 を 60° 以下で照射することにより、アモルファスカーボンの生成を抑制し、生成物中のカーボンナノホーン集合体 117 の割合、すなわちカーボンナノホーン集合体 117 の収率を向上させることができる。また、照射角は 45° とすることが特に好ましい。 45° で照射することにより、生成物中のカーボンナノホーン集合体 117 の割合をより一層向上させることができる。

【0035】

また、図 3 を用いて前述したように、一度レーザー光 103 が照射されるとグラファイトロッド 101 の側面は粗面化する。粗面化された部位に再度レーザー光 103 を照射すると、照射位置におけるパワー密度にばらつきが生じ、ブルー

ム 109 の発生方向にも乱れが生じる。このように、一度レーザー光 103 が照射された面に再度レーザー光 103 を照射すると、照射位置におけるパワー密度を一定とすることができないため、カーボンナノホーン集合体 117 の収率が低下する。

【0036】

そこで、図 1 の装置においては、図 2 に示すように、グラファイトロッド 101 の下部に切削バイト 105 が設けられている。レーザー光 103 の照射部位よりも下部に切削バイト 105 を配置すると、レーザー光 103 の照射されたグラファイトロッド 101 側面が順次回転されて切削バイト 105 の位置に移動し、切削されるため、照射位置を連続的に平滑化することができる。このため、レーザー光 103 の照射面は、常に平滑面となる。よって、グラファイトロッド 101 を製造チャンバー 107 から取り出して平滑化の処理を行わなくても、レーザー光 103 照射部位のパワー密度を一定とすることができる。したがって、グラファイトロッド 101 を製造チャンバー 107 に設置したままでレーザー光 103 を連続的に照射することが可能となり、カーボンナノホーン集合体 117 を効率よく大量生産することができる。

【0037】

また、図 2 のようにレーザー光 103 を照射すると、プルーム 109 は上方に生じるため、カーボンナノホーン集合体 117 は上方に向かって生成する。したがって、切削バイト 105 をグラファイトロッド 101 の下部に設けておけば、生成したカーボンナノホーン集合体 117 と切削バイト 105 によって切削された原料であるグラファイトロッド 101 の切削屑とを効率よく分離することが可能となる。

【0038】

なお、図 2 のように、切削バイト 105 の設置部位は、レーザー光 103 の照射部位から、グラファイトロッド 101 の移動方向に対して等しいかまたはやや後方となる位置に設けることが好ましい。こうしておけば、グラファイトロッド 101 の側面がレーザー光 103 の照射前に切削されてしまうという不具合を確実に防止することができる。

【0039】

以上のように、図1のナノカーボンの製造装置においては、円筒形のグラファイトロッド101の側面に照射されるレーザー光103の部位が連続的に変化し、かつ照射部位が回転することによって切削バイト105によって平滑化されるため、カーボンナノホーン集合体117を連続的に製造することが可能である。また、グラファイトターゲットであるグラファイトロッド101を繰り返しレーザー光103照射に供することができるため、グラファイトロッド101を有効利用することが可能である。

【0040】

次に、図1の製造装置を用いたカーボンナノホーン集合体117の製造方法について具体的に説明する。

【0041】

図1の製造装置において、グラファイトロッド101として、高純度グラファイト、たとえば丸棒状焼結炭素や圧縮成形炭素等を用いることができる。

【0042】

また、レーザー光103として、たとえば、高出力CO₂ガスレーザー光などのレーザー光を用いる。

【0043】

レーザー光103のグラファイトロッド101への照射は、Ar、He等の希ガスをはじめとする反応不活性ガス雰囲気、たとえば10³Pa以上10⁵Pa以下の雰囲気中で行う。また、製造チャンバー107内を予めたたとえば10⁻²Pa以下に減圧排気した後、不活性ガス雰囲気とすることが好ましい。

【0044】

また、グラファイトロッド101の側面におけるレーザー光103のパワー密度がほぼ一定、たとえば20±10kW/cm²となるようにレーザー光103の出力、スポット径、および照射角を調節することが好ましい。

【0045】

たとえば、レーザー光103の出力はたとえば3kW以上5kW以下、パルス幅はたとえば20msec以上とすることができ、連続発振することが望ましい。

。また、好ましい照射角度は、図2を用いて前述した通りである。照射時のレーザー光103のグラファイトロッド101側面へのスポット径は、たとえば0.5mm以上5mm以下とすることができる。

【0046】

レーザー光103照射時に、回転装置115によってグラファイトロッド101を円周方向に一定速度で回転させる。回転数はたとえば1rpm以上20rpm以下とする。

【0047】

グラファイトロッド101の下部に設ける切削バイト105は、グラファイトロッド101側面を平滑化することができる構成であれば特に制限はなく、種々の形状、材質のものを用いることができる。また、図1の製造装置では切削バイト105を用いているが、これに代わり種々の切削部材、またたとえばやすり等の研磨部材や研削部材などを用いてもよい。また、切削グラファイト回収チャンバー121を設ける位置には、切削バイト105による切削屑をカーボンナノホーン集合体117と分離して回収することができる位置であれば特に制限はない。

【0048】

図1の装置では、レーザー光103の照射によって得られたすす状物質がナノカーボン回収チャンバー119に回収される構成となっているが、適当な基板上に堆積して回収することや、ダストバッグによる微粒子回収の方法によって回収することもできる。また、不活性ガスを反応容器内で流通させて、不活性ガスの流れによりすす状物質を回収することもできる。

【0049】

図1の装置を用いて得られたすす状物質は、カーボンナノホーン集合体117を主として含み、たとえば、カーボンナノホーン集合体117が90wt%以上含まれる物質として回収される。

【0050】

なお、カーボンナノホーン集合体117を構成するカーボンナノホーンの形状、径の大きさ、長さ、先端部の形状、炭素分子やカーボンナノホーン間の間隔等

は、レーザー光 103 の照射条件などによって様々に制御することが可能である。

【0051】

以上、ナノカーボンとしてカーボンナノホーン集合体を製造する場合を例に説明したが、図 1 の製造装置を用いて製造されるナノカーボンはカーボンナノホーン集合体には限定されない。

【0052】

たとえば、図 1 の製造装置を用いてカーボンナノチューブを製造することもできる。カーボンナノチューブを製造する場合、グラファイトロッド 101 の側面におけるレーザー光 103 のパワー密度がほぼ一定、たとえば $50 \pm 10 \text{ kW/cm}^2$ となるようにレーザー光 103 の出力、スポット径、および照射角を調節することが好ましい。

【0053】

また、グラファイトロッド 101 には、触媒金属をたとえば 0.0001 wt % 以上 5 % 以下添加する。金属触媒として、たとえば Ni、Co などの金属を用いることができる。

【0054】

図 1 の製造装置を用いることにより、レーザー光 103 が照射されたグラファイトロッド 101 側面を平滑化し、再度のレーザー光 103 照射に供することができるため、カーボンナノチューブの製造においてもこれを安定的に大量生産することが可能である。

【0055】

【実施例】

(実施例)

本実施例では、図 1 に示す構成のナノカーボンの製造装置を用いてカーボンナノホーン集合体 117 を作製した。

【0056】

グラファイトロッド 101 として直径 100 mm、長さ 250 mm の焼結丸棒炭素を用い、これを製造チャンバー 107 内の回転装置 115 に固定した。製造

チャンバー 107 内を 10^{-3}Pa にまで減圧排気した後、Ar ガスを 10^5Pa の雰囲気圧となるように導入した。次いで、室温中にてグラファイトロッド 101 を回転数 6 rpm で回転させ、また 0.3mm/sec にて水平移動させながら、その側面にレーザー光 103 を照射した。

【0057】

レーザー光 103 には高出力の CO_2 レーザー光を用い、その出力は $3\sim 5\text{kW}$ 、波長 $10.6\mu\text{m}$ 、パルス幅 5sec の連続発振とした。また、グラファイトロッド 101 の長さ方向に垂直な断面において、照射位置と円の中心とを結ぶ線分と、水平面とのなす角、すなわち照射角を 45° とし、グラファイトロッド 101 側面でのパワー密度は $20\text{kW/cm}^2 \pm 10\text{kW/cm}^2$ とした。

【0058】

得られたすす状物質について TEM 観察を行った。また、ラマン分光法により、 1350cm^{-1} と 1590cm^{-1} の強度を比較し、カーボンナノホーン集合体 117 の収率を算出した。

【0059】

次に、切削バイト 105 によって平滑化されたグラファイトロッド 101 側面に 2 回目のレーザー光 103 照射を行い、上述の方法によりカーボンナノホーン集合体 117 の収率を求めた。さらに、2 回目の照射を行った部位にさらに 3 度目の照射を行い、同様に生成物の評価を行った。

【0060】

得られたすす状物質を透過型電子顕微鏡 (TEM) により観察したところ、1 回目～3 回目のいずれの照射においても、カーボンナノホーン集合体 117 が支配的に生成しており、その粒子径は、 80nm 以上 120nm 以下の範囲であった。また、1 回目～3 回目の照射後に得られた物質全体中のカーボンナノホーン集合体 117 の収率をラマン分光法によって求めたところ、図 4 に示すように、いずれも 90% 以上の高収率となった。

【0061】

したがって、本実施例では、レーザー光 103 の照射されたグラファイトロッド 101 側面を切削バイト 105 にて切削し、再度レーザー光 103 を照射する

ことにより、高い収率でカーボンナノホーン集合体 117 が得られた。またこの工程は、カーボンナノホーン集合体の大量生産に好適な連続工程であることが明らかになった。

【0062】

(比較例)

図 1 の装置において、切削バイト 105 を用いずにカーボンナノホーン集合体 117 の製造を行った。グラファイトロッド 101 の側面を切削バイト 105 で切削しないことの他は、実施例と同様にして行った。

【0063】

その結果、図 4 に示すように、同一のグラファイトロッド 101 に対するレーザー光 103 の照射回数が増すにつれ、カーボンナノホーン集合体の収率は顕著に減少した。そこで、レーザー光 103 を 1 回照射した後の側面を肉眼で観察したところ、レーザー光 103 の照射部位に深さ約 3 mm の凹部が形成されており、凹部の側面も照射前の側面に比べて粗面化していた。したがって、凹部の形成された側面に再度レーザー光 103 が照射されたため、レーザー光 103 の入射角やパワー密度が変化するため、カーボンナノホーン集合体 117 の収率が減少したと考えられる。

【0064】

【発明の効果】

以上説明したように本発明によれば、光が照射されたグラファイトターゲットの表面を平滑化し、平滑化されたグラファイトターゲットの表面に、再度、光照射し、グラファイトターゲットから蒸発した炭素蒸気をナノカーボンとして回収することにより、ナノカーボンを安定的に大量生産することができる。また本発明によれば、カーボンナノホーン集合体を安定的に大量生産することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明に係るナノカーボンの製造装置の構成の一例を示す図である。

【図 2】

図 1 のナノカーボンの製造装置の構成を説明するための図である。

【図 3】

固体炭素単体物質のレーザー光照射部位について説明するための図である。

【図 4】

レーザー光の照射回数とカーボンナノホーン集合体の収率との関係を示す図である。

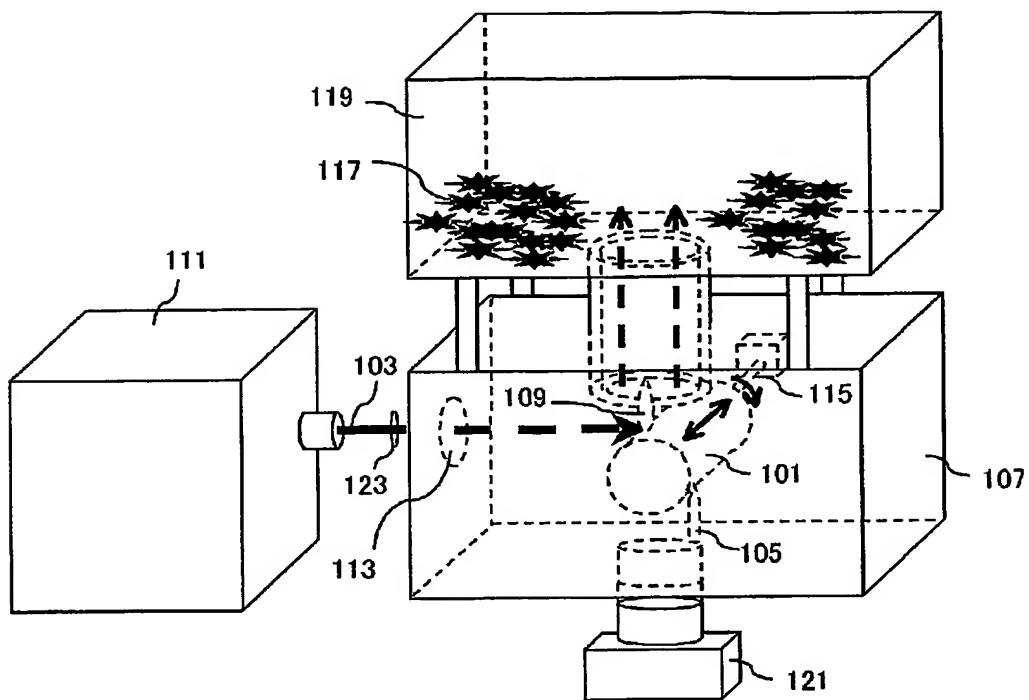
【符号の説明】

- 101 グラファイトロッド
- 103 レーザー光
- 105 切削バイト
- 107 製造チャンバー
- 109 プルーム
- 111 レーザー光源
- 113 レーザー光窓
- 115 回転装置
- 117 カーボンナノホーン集合体
- 119 ナノカーボン回収チャンバー
- 121 切削グラファイト回収チャンバー
- 123 レンズ

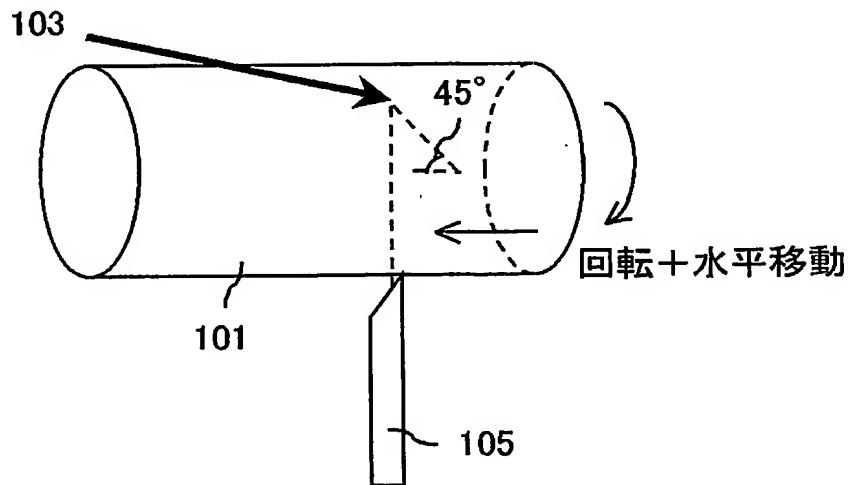
【書類名】

図面

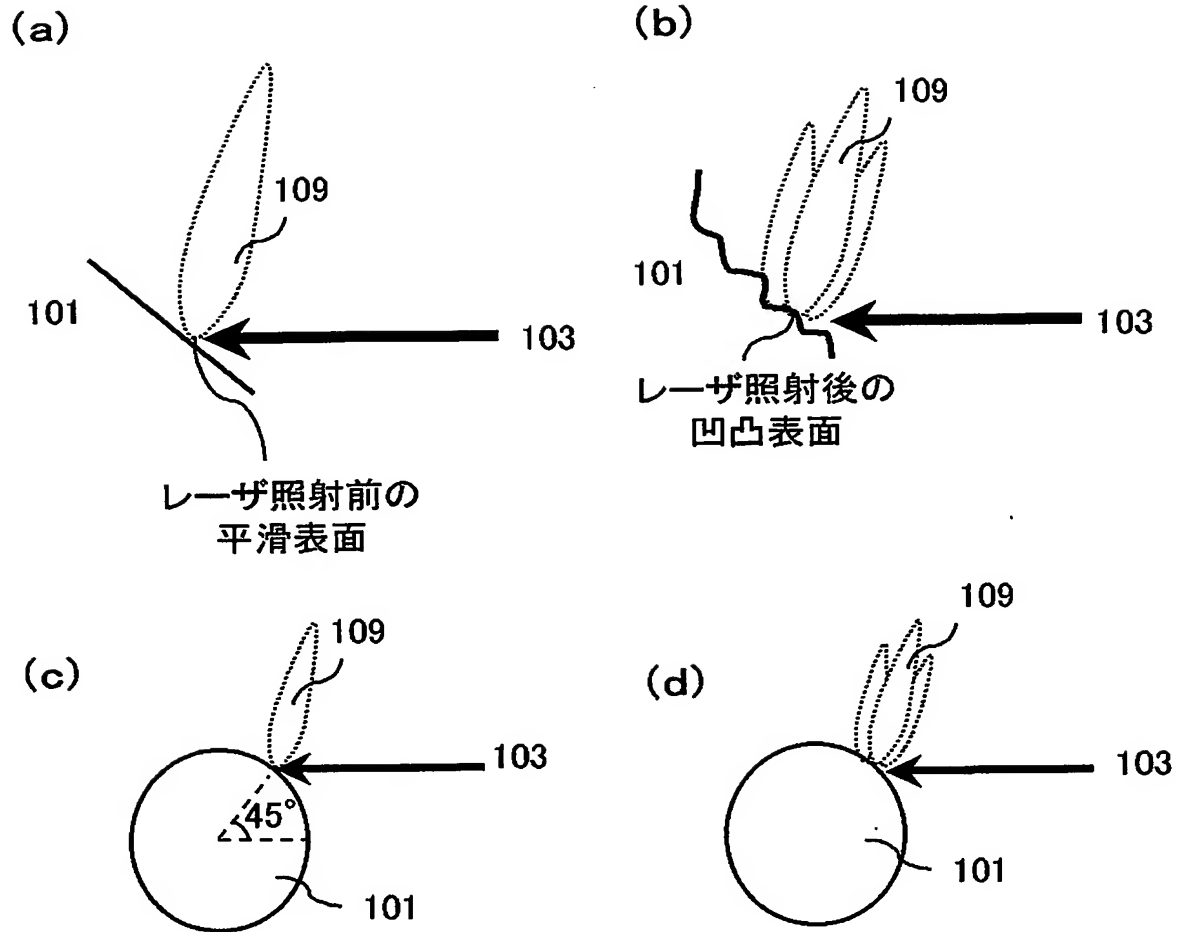
【図 1】



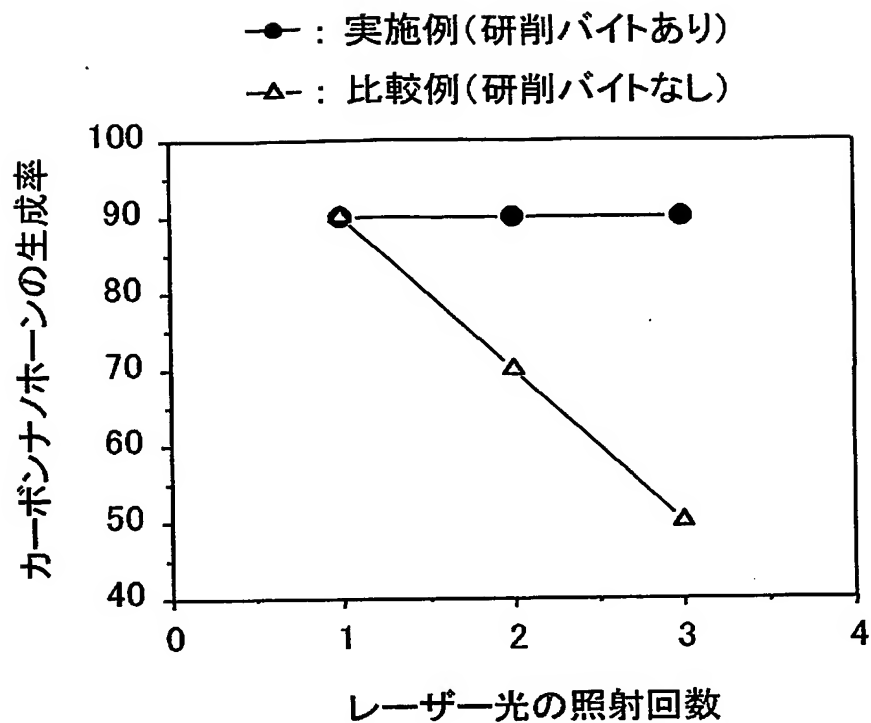
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ナノカーบอนを安定的に大量生産するための製造方法および製造装置を提供する。

【解決手段】 製造チャンバー 107 において、円筒形のグラファイトロッド 101 を回転装置 115 に固定し、グラファイトロッド 101 の長さ方向を軸として回転し、また長さ方向に左右に移動させることを可能とする。グラファイトロッド 101 の側面にレーザー光源 111 からレーザー光 103 を照射し、プラズマ 109 の発生方向にナノカーボン回収チャンバー 119 を設ける。一方、グラファイトロッド 101 の側面のうち、レーザー光 103 の照射された面を、回転装置 115 により速やかに回転し、切削バイト 105 によって平滑化する。切削バイト 105 によるグラファイトロッド 101 の切削屑は、切削グラファイト回収チャンバー 121 に回収し、生成したカーボンナノホーン集合体 117 と分離する。

【選択図】 図 1

【書類名】 手続補正書
【整理番号】 34103729
【提出日】 平成15年 5月19日
【あて先】 特許庁長官殿

【事件の表示】

【出願番号】 特願2003- 31927

【補正をする者】

【識別番号】 000004237

【氏名又は名称】 日本電気株式会社

【代理人】

【識別番号】 100110928

【弁理士】

【氏名又は名称】 速水 進治

【電話番号】 03-5784-4637

【手続補正 1】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 その他

【補正方法】 追加

【補正の内容】

【その他】 国等の委託研究の成果に係る特許出願（平成14年度新エネルギー・産業技術総合開発機構「ナノカーボン応用製品創製プロジェクト」に関する委託研究、産業活力再生特別措置法第30条の適用を受けるもの）

【プルーフの要否】 要

特願 2 0 0 3 - 0 3 1 9 2 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 4 2 3 7]

1. 変更年月日
[変更理由]
住 所
氏 名

1 9 9 0 年 8 月 2 9 日
新規登録
東京都港区芝五丁目 7 番 1 号
日本電気株式会社